

(51) Int. Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号
C 0 7 D 405/12	2 3 9	7602-4C
305/08		7252-4C
405/12	2 5 1	7602-4C

F I

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 17 頁)

(21) 出願番号 特願平5-514493
 (86) (22) 出願日 平成5年(1993)2月9日
 (85) 翻訳文提出日 平成6年(1994)8月15日
 (86) 国際出願番号 PCT/EP93/00316
 (87) 国際公開番号 WO93/17016
 (87) 国際公開日 平成5年(1993)9月2日
 (31) 優先権主張番号 539/92-2
 (32) 優先日 1992年2月21日
 (33) 優先権主張国 スイス (CH)

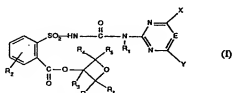
(71) 出願人 チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト
 スイス国、ツェーハー—4002 バーゼル、
 クリベックシュトラッセ 141
 (72) 発明者 ヤウ、ピート
 スイス国、ツェーハー—4147 アエシュ、
 ビルスヴェーク 10
 (72) 発明者 クールマイエル、レイネル
 ドイツ連邦共和国、デー—7817 イーリン
 ゲン 2、ブルグンデルシュトラッセ10
 (74) 代理人 弁理士 専 経夫 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 除草剤としてのスルホニル尿素

(57) 【要約】

式 1:



〔式中、 R_1 は水素原子又はメチル基を表し； R_2 は水素原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、炭素原子、 $(W) = R_6$ 、 $-NO_2$ 、 $-N(R_6)R_{10}$ 、 $-O-$ 、 $-C \equiv CR_{11}$ 、または $-CN$ を表し； R_3 、 R_4 、 R_{11} 、

R_6 、 R_8 と R_9 は他と独立して水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し； R_5 は炭素原子数1ないし4のアルキル基、1、2、3又は4個のハロゲン原子、炭素原子数1ないし3のアルコキシ基又は炭素原子数1ないし3のアルキルチオ基により置換されている炭素原子数1ないし4のアルキル基を表すか、または炭素原子数2ないし4のアルケニル基または1、2、3又は4個

のハロゲン原子により置換されている炭素原子数2ないし4のアルケニル基を表し； R_7 は水素原子、メトキシ基、エトキシ基または炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し； R_{10} は水素原子または炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し； R_{11} は水素原子、メチル基またはエチル基を表し； R_{12} は水素原子またはメチル基を表し； E は $-CH=$ または $-N=$ を表し； X は炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキル基、炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキルチオ基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素原子数2ないし5のアルコキシアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシアルコキシ基、アミノ基、炭素原子数1ないし3のアルキルアミノ基またはジ（炭素原子数1ないし3のアルキル）アミノ基を表し； Y は炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキルチオ基、炭素原子数1ないし

4のアルキルチオ基、炭素原子数2ないし5のアルコキシアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコシアルコキシ基、炭素原子数2ないし5のアルキルチオアルキル基、シクロプロピル基又は $-\text{OCHF}_2$ を表し；Wは酸素原子、硫黄原子、SOまたは SO_2 を表し；そしてnは0又は1を表し；但し、a)基 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 および R_5 の少なくとも一つは炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；b)Xがハロゲン原子を表す場合は、Eは $-\text{CH}=\text{}$ を表し；そしてc)XまたはYが $-\text{OCHF}_2$ または $-\text{SCHF}_2$ を表す場合は、Eは $-\text{CH}=\text{}$ を表す。)のN-フェニルスルホニル-N'-ピリミジニルおよびN'-トリアジニル-尿素は、優れた発芽前または発芽後選択的除草と成長調節作用の特性を持つ。

R_{11} は水素原子または炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R_{12} は水素原子、メチル基またはエチル基を表し；

R_{13} は水素原子またはメチル基を表し；

Eは $-\text{CH}=\text{}$ または $-\text{N}=\text{}$ を表し；

Xは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキル基、炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキルチオ基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素原子数2ないし5のアルコキシアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコシアルコキシ基、アミノ基、炭素原子数1ないし3のアルキルアミノ基またはグ(炭素原子数1ないし3のアルキル)アミノ基を表し；

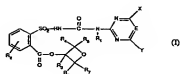
Yは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキルチオ基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、炭素原子数2ないし5のアルコシアルコキシ基、炭素原子数2ないし5のアルコキシアルコキシ基、炭素原子数2ないし5のアルキルチオアルキル基、シクロプロピル基又は $-\text{OCHF}_2$ を表し；

Wは酸素原子、硫黄原子、SOまたは SO_2 を表し；そして

nは0又は1を表し；

請求の範囲

1. 式I:



(式中、 R_1 は水素原子又はメチル基を表し；

R_2 は水素原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、炭素原子、(W)、 $-\text{R}_1$ 、 $-\text{NO}_2$ 、 $-\text{N}(\text{R}_2)\text{R}_{11}$ 、 $-\text{O}-\text{C}(\text{R}_{12})=\text{C}(\text{R}_{13})$ または $-\text{CN}$ を表し；

R_3 、 R_4 、 R_5 と R_7 は各と独立して水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R_6 は炭素原子数1ないし4のアルキル基、1、2、3又は4個のハロゲン原子、炭素原子数1ないし3のアルコキシ基又は炭素原子数1ないし3のアルキルチオ基により置換されている炭素原子数1ないし4のアルキル基を表すか、または炭素原子数2ないし4のアルキル基または1、2、3又は4個のハロゲン原子により置換されている炭素原子数2ないし4のアルキル基を表し；

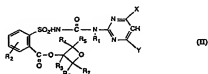
R_8 は水素原子、メチル基、エチル基または炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

但し、a)基 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 および R_5 の少なくとも一つは炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

b)Xがハロゲン原子を表す場合は、Eは $-\text{CH}=\text{}$ を表し；そして

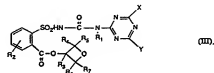
c)XまたはYが $-\text{OCHF}_2$ または $-\text{SCHF}_2$ を表す場合は、Eは $-\text{CH}=\text{}$ を表す。)の化合物およびその塩。

2. 式II:



(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_7 、XおよびYは請求項1中と同じに定義される。)の請求項1記載の化合物。

3. 式III:



(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、 X および Y は請求項1中と同じに定義される。)の請求項1記載の化合物。

4. R_1 が水素原子を表す請求項1ないし3のいずれかに記載の化合物。

5. R_2 が水素原子を表す請求項1ないし4のいずれかに記載の化合物。

6. R_3 、 R_4 、 R_5 と R_6 が水素原子を表す請求項1ないし5のいずれかに記載の化合物。

7. R_1 が水素原子を表す請求項1ないし6のいずれかに記載の化合物。

8. R_1 と R_2 が水素原子を表し、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 が互いに独立して水素原子またはメチル基を表し、

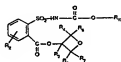
Eが $-CH=$ または $-N=$ を表し、

Xがメチル基、メトキシ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジフルオロメトキシ基または塩素原子を表しそしてYがメチル基、メトキシ基、ジフルオロメトキシ基、エトキシ基またはシクロプロピル基を表し、

但し、a) R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 および R_7 の少なくとも一つがメチル基を表し、

b) Eが、Xが塩素原子である場合、 $-CH=$ を表しそして

c) Eが、XまたはYが $-OCHF_3$ を表す場合、 $-CH=$ を表す



(VI)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は請求項1中と同じに定義されそして R_8 は式V中と同じに定義される。)のスルホニルカーバメートを、式VII:



(VII)

(式中、 R_1 、E、XおよびYは請求項1中と同じに定義される。)のアミンと、塩基の存在下、反応させることにより、または

c) 式IV:



(IV)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は請求項1中と同じに定義される。)のフェニルスルホンミドを、式VIII:

請求項1ないし3のいずれかに記載の化合物。

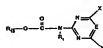
9. 請求項1記載の式Iの化合物の製造法であって;

a) 式IV:



(IV)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は請求項1中と同じに定義される。)のフェニルスルホンミドを、式V:



(V)

(式中、 R_1 、E、XおよびYは請求項1中と同じに定義され、そして R_8 はフェニル基または炭素原子数1ないし4のアルキル基またはハロゲン原子により置換されているフェニル基を表す。)のピリミジニルカーバメートまたはトリアジニルカーバメートと、塩基の存在下、反応させることにより;または

b) 式VI:



(VII)

(式中、E、XおよびYは請求項1中と同じに定義される。)のピリミジニルイソシアナートまたはトリアジニルイソシアナートと、塩基の存在下、反応させることによるいずれかの方法で製造することを特徴とする製造法。

10. 式IV:



(IV)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は請求項1中と同じに定義される。)のフェニルスルホンミド。

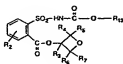
11. 式IX:



(IX)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は請求項1中と同じに定義される。)のフェニルスルホニルクロライド。

12. 式VI:



(VI)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は請求項1中と同じに定義され、そして R_{1a} はフェニル基または炭素原子数1ないし4のアルキル基またはハロゲン原子により置換されているフェニル基を要す。)のスルホニルカーバメート。

13. 請求項1記載の式Iの一種またはそれより多いスルホニル炭素からなる除草および植物成長抑制組成物。

14. 0.1%ないし85%の請求項1記載の式Iの有効成分からなる請求項13記載の組成物。

15. 望ましくない植物の生育を抑制する方法であって:

請求項1記載の式Iの有効成分またはこの有効成分からなる組成物の有効量、植物またはその環境に適用することからなる方法。

16. ヘクタール当たり0.001と2kgの間の量の

ジフェニルカルボン酸誘導体およびスルファモイルフェニル炭素誘導体から選択された薬害殺剤の除草剤-拮抗的に有効な量で、同時にまたは互いに独立して、作物、それらの種子または栽培領域を処理することからなる方法。

22. 作物植物の茎または作物植物の栽培領域を、請求項1記載の式Iの除草剤または式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 が同時に水素原子を要す式Iの除草剤の0.001ないし2kg/ヘクタールで、キノリン-8-オキシ酢酸誘導体、ジフェニルカルボン酸誘導体およびスルファモイルフェニル炭素誘導体から選択された薬害殺剤の0.005ないし0.5kg/ヘクタールの量で、処理することからなる請求項121記載の方法。

有効成分が適用される請求項15記載の方法。

17. 植物の生育を阻止する方法であって:

請求項1記載の式Iの有効成分またはこの有効成分からなる組成物の有効量を、植物またはその環境に適用することからなる方法。

18. 有用植物の作物中の雑草の発芽前または発芽後の選択的抑制のための請求項15記載の方法。

19. 有用植物の作物中の雑草の発芽前または発芽後の選択的抑制のために、請求項13記載の組成物を使用する方法。

20. 不活性塩体と添加物の塩に、

a) 請求項1記載の式Iの化合物のまたは式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 が同時に水素原子を要す式Iの化合物の除草的に有効な量、および

b) 有効成分として、キノリン-8-オキシ酢酸誘導体、ジフェニルカルボン酸誘導体およびスルファモイルフェニル炭素誘導体から選択された薬害殺剤の除草剤-拮抗的に有効な量

からなる混合物を含む、有用植物の作物中の雑草の発芽前または発芽後の選択的抑制のための組成物。

21. 有用植物の作物中の雑草(細草と広葉雑草)の選択的抑制のための方法であって:

請求項1記載の式Iの除草剤または式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 が同時に水素原子を要す式Iの除草剤の有効量、及びキノリン-8-オキシ酢酸誘導体、

明細書

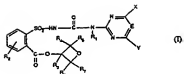
除草剤としてのスルホニル炭素

本発明は新規な、除草作用のあるおよび植物の成長を調節するN-フェニルスルホニル-N'-ピリミジニル-およびトリアジニル-炭素、それらの製造方法、有効成分としてそれらを含む組成物、および雑草を防除する、特に、有益な植物である作物において雑草を選択的に防除するかまたは植物の成長を調節および抑制するためのこれらの組成物の使用方法に関する。

除草作用を持つ炭素化合物、トリアジン化合物およびピリミジン化合物は一般に公知である。そのような化合物は、例えば欧州特許出願第0 007 887号、0 030 138号、0 030 138号、0 073 562号および0 126 711号に記載されている。

除草作用と植物成長調節作用を持つ新規のスルホニル炭素を今も見出した。

本発明のN-フェニルスルホニル-N'-ピリミジニル-およびN'-トリアジニル-炭素は下記式I:



(式中、R₁ は水素原子又はメチル基を表し：

R_1 は水素原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、
 炭素原子、(W)、 $-R_1$ 、 $-NO_2$ 、
 $-N(R_1)R_2$ 、 $-O-\overset{\text{R}_1}{\underset{|}{C}}\equiv CR_2$ または $-CN$
 を表し；

R_2 、 R_4 、 R_6 、 R_8 と R_7 は他と独立して水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し；

R: は炭素原子数1ないし4のアルキル基、1、2、3又は4個のハロゲン原子、炭素原子数1ないし5のアルコキシ基又は炭素原子数1ないし3のアルキルオキソ基により置換されている炭素原子数1ないし4のアルキル基を表すか、または炭素原子数2ないし4のアルゲニル基または1、2、3又は4個のハロゲン原子により置換されている炭素原子数2ないし4のアルゲニル基を表す;

R₁ は水素原子、メトキシ基、エトキシ基または炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し；

R₁は水素原子または炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し；

R₁は水素原子、メチル基またはエチル基を表し：

b) Xがハロゲン原子である場合はEは $-CH=$ を表し、そして

c) XまたはYが $-OCHF$ 、または $-SCHF$ を表す場合は、Eは $-CH=$ を表す。)で表されるそれらと、これら化合物の塩である。

ハロゲン原子としてのXの適当なものは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子または碘素原子、好ましくはフッ素原子、塩素原子および臭素原子である。

炭素原子数1ないし4のアルキル基としてのR₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆、R₇、R₈、R₉、R₁₀、XおよびYの適当なものは、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、イソブチル基又はtert-ブチル基である。炭素原子数1ないし3のアルキル基が好ましい。

1 ないし 4 のハロゲン原子により置換されている炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基としての R₁ の適当なものは、特に、フッ素原子、塩素原子、臭素原子または灰素原子により置換されているアルキル基である。これらのハロゲン置換されている炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基の中で好ましいものは、ハロゲン原子、特にフッ素原子または塩素原子により置換されているアルキル基、例えばフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエ

R₁ は水素原子またはメチル基を表し；

E は $-CH=$ または $-N=$ を表し；

Xは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキル基、炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキルチオ基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素原子数2ないし5のアルコシアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコシアルコキシ基、アミノ基、炭素原子数1ないし3のアルカルボニル基またはジ(炭素原子数1ないし3のアルカル)アミノ基を表し、

Yは炭素原子数1ないし4のアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基、炭素原子数1ないし4のハロアルキル基、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基、炭素原子数2ないし5のアルコシアルキル基、炭素原子数2ないし5のアルコキシアルコキシ基、炭素原子数2ないし5のアルキルチオアルキル基、シクロプロピル基又は- OCHF_3 を表し、

Wは微量元素、硫黄原子、S OまたはS O₂を表し；
そして

n は 0 又は 1 を表し :

但し、a) 基 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 および R_5 の少なくとも一つは炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し、

チル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチル基および2, 2, 2-トリクロロエチル基；好ましくはジフルオロメチル基およびトリフルオロメチル基である。

炭素原子数1ないし3のアルキルチオ基により置換されている炭素原子数1ないし4のアルキル基としてのR₁の適当なものは、例えば：メチルチオエチル基、エチルチオエチル基、プロピルチオエチル基、イソプロピルチオメチル基、好ましくはメチルチオメチル基とエチルチオエチル基である。

臭素原子を1ないし4のハロアルキル基としてのXの適当なもの、特に、フッ素原子、塩素原子、臭素原子または碘素原子により置換されているアルキル基である。これらの基の中で好ましいものは、ハロゲン原子、特にフッ素原子又は塩素原子により単に13置換されたアルキル基、例えばエチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチル基および2, 2, 2-トリクロロエチル基; 好ましくはジフルオロメチル基およびトリフルオロメチル基である。

炭素原子数1ないし4のアルコキシ基としてのXおよびYの適当なもの、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、n-ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ

基およびtert-ブチルオキシ基：好ましくはメトキシ基とエトキシ基である。

炭素原子数1ないし4のハロアルコキシ基としてのXおよびYの適当なものは、例えば、ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、2, 2-トリフルオロエトキシ基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエトキシ基、2-フルオロエトキシ基、2-クロロエトキシ基および2, 2-ジフルオロエトキシ基：好ましくはジフルオロメトキシ基およびトリフルオロメトキシ基である。

炭素原子数2ないし5のアルコキシアラルキル基としてのXおよびYのための適当なものおよび〔炭素原子数1ないし3のアルコキシ〕〔炭素原子数1ないし4のアルキル〕基としてのR₁のための適当なものは、例えばメトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基またはプロピルオキシメチル基である。

炭素原子数2ないし4のアルケニル基としてのR₂の適当なものは、直鎖または分枝したアルケニル基、例えばビニル基、アリル基、メタリル基、1-メチルアリル基又は2-ブテン-1-イル基であって、2ないし3の炭素鎖長を持つアルケニル基が特に適当である。

1ないし4個のハロゲン原子により置換されている炭素原子数2ないし4のアルケニル基としてのR₃の適当なものは、例えば、3, 3-ジフルオロブタン-2-エン-1-イル基である。

炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基としてのXお

よびYの適当なもの、例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、n-ブチルチオ基、イソブチルチオ基、sec-ブチルチオ基またはtert-ブチルチオ基、好ましくはメチルチオ基またはエチルチオ基である。

炭素原子数1ないし4のハロアルキルチオ基としてのXおよびYの適当なものは、特に、フッ素原子、塩素原子、臭素原子または炭素原子により置換されているアルキルチオ基である。これらの基の中で好ましいものは、ハロゲン原子、特にフッ素原子または塩素原子により置換された三置換されているアルキルチオ基、例えばフルオロメチルチオ基、ジフルオロメチルチオ基、トリフルオロメチルチオ基、クロロメチルチオ基、ジクロロメチルチオ基またはトリクロロメチルチオ基である。

炭素原子数2ないし5のアルキルチオアルキル基としてのYの適当なものは、例えば、メチルチオエチル基、エチルチオエチル基、プロピルチオエチル基またはイソプロピルチオメチル基、好ましくはメチルチオメチル基とエチルチオエチル基である。

炭素原子数2ないし5のアルコキシアルコキシ基としてのXおよびYの適当なものは、例えば、メトキシメチル基、メトキシエトキシ基、メトキシプロピルオキシ基、エトキシメチル基、エトキシエトキシ基およびプロピルオキシメチル基である。

炭素原子数1ないし3のアルキルアミノ基としてのX

の適当なものは、例えば、メチルアミノ基、エチルアミノ基、n-プロピルアミノ基またはイソプロピルアミノ基である。基Xとしてのジ〔炭素原子数1ないし3のアルキル〕アミノ基は、例えば、ジメチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、ジエチルアミノ基またはn-プロピルメチルアミノ基である。

本発明はまたアミン、アルカリ金属塩基およびアルカリ土類金属塩基もしくは第四級アンモニウム塩基と形成可能な式Iで表される化合物の塩を含む。

塩形成物質としての好ましいアルカリ金属水酸化物もしくはアルカリ土類金属水酸化物は、リチウム水酸化物、ナトリウム水酸化物、カリウム水酸化物、マグネシウム水酸化物およびカルシウム水酸化物、特にナトリウム水酸化物またはカリウム水酸化物である。

塩形成に適当なアミンの例は、第一、第二および第三の脂肪族および芳香族アミン、例えば、メチルアミン、エチルアミン、プロピルアミン、イソプロピルアミン、4個のブチルアミン異性体、n-アミルアミン、イソアミルアミン、ヘキシルアミン、ヘプチルアミン、オクタールアミン、ノニルアミン、デシルアミン、ペンタデシルアミン、ヘキサデシルアミン、ヘプタデシルアミン、オクタデシルアミン、メチルエチルアミン、メチルイソプロピルアミン、メチルヘキシルアミン、メチルノニルアミン、メチルペンタデシルアミン、メチルオクタデシル

アミン、エチルブチルアミン、エチルヘプチルアミン、エチルオクタールアミン、ヘキシルヘプチルアミン、ヘキシルオクタールアミン、ジメチルアミン、ジエチルアミン、ジ-n-プロピルアミン、ジ-n-ブチルアミン、ジ-n-アミルアミン、ジ-イソ-アミルアミン、ジヘキシルアミン、ジヘプチルアミン、ジオクタールアミン、エタノールアミン、n-プロパノールアミン、イソプロパノールアミン、N、N-ジエチルエタノールアミン、N-エチルプロパノールアミン、N-エチルプロパノールアミン、N-ブチルエタノールアミン、アリルアミン、n-ブチル-2-アミン、n-ペンチル-2-アミン、2, 3-ジメチルブチル-2-アミン、ジブチル-2-アミン、n-ヘキシル-2-アミン、プロピレンジアミン、ジエタノールアミン、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリ-n-プロピルアミン、トリイソプロピルアミン、トリ-n-ブチルアミン、トリイソブチルアミン、トリ-sec-ブチルアミン、トリ-n-アミルアミン；環素類アミン、例えばピリジン、キノリン、イソキノリン、モルホリン、ピペリジン、ピロリジン、インドリン、キヌクリンおよびアゼピン；第1級アリールアミン、例えばアニリン、メトキシアニリン、エトキシアニリン、o-, m-またはp-トルイジン、フェニレンジアミン、ベンゾジン、ナフチルアミンおよびo-, m-またはp-クロロアニリンであるが、特に、エチル-, プロピル-, ジエチル-またはトリエチル-



(IV)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は式 I 中と同じに定義される。) のフェニルスルホンアミドを、式 VII i:



(VIII)

(式中、 E 、 X および Y は式 I 中と同じに定義される。) のピリミジニルシアンアトまたはトリアツニルシアンアトと、塩基の存在下、反応させることによるいずれかの方法で製造できる。

式 I の化合物は、式 IX:



(IX)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は式 I 中と同じに定義される。) の化合物を、式 VII i の化合

一般に、反応は少し加熱しながら進行し、窒素で行われてよい。反応時間を短くするため、または反応を開始するため、反応混合物を短時間内に沸点まで加熱するのが都合が良い。反応熱源として数種の塩基を添加することによって反応時間を短くすることも可能である。適当な塩基は特に、第三級アミン、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、キヌクリジン、1, 4-ジアザビシクロ [2, 2, 2] オクタン、1, 5-ジアザビシクロ [4, 3, 0] -5-ノネンまたは 1, 5-ジアザビシクロ [5, 4, 0] -7-ウンデセンである。

別法として、無機塩基、例えば、水素化物、例えば、水素化ナトリウムまたは水素化カルシウム；水酸化物、例えば、水酸化ナトリウムおよび水酸化カリウム；炭酸塩、例えば、炭酸ナトリウムおよび炭酸カリウム、または炭酸水素化物、例えば、炭酸水素カリウムおよび炭酸水素ナトリウムもまた、塩基として使用され得る。

式 I の最終生成物は、蒸餾および/または溶媒の蒸発によって単離され、そして容易に溶解しない溶媒、例えば、エーテル、芳香族炭化水素または塩素化炭化水素の中での固体残渣の再結晶または層析によって精製される。

式 I の化合物の上記の製造法では、 R_1 は、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基または塩素原子により置換されているフェニル基、特に好ましくはフェニル基である。

物と、式 X:



(式中、 M はアルカリ金属または $R_{11}R_{12}R_{13}R_{14}Q$ (式中、 R_{11} 、 R_{12} 、 R_{13} 、 R_{14} は互いに独立して炭素原子数 1 ないし 8 のアルキル基、ベンジル基またはフェニル基を表し、炭素原子の総数は 36 より大きくはなく；そして Q は置換原子、置換原子またはリン原子を表す。) を表す。) のシアン酸塩のアンモニウム、ホスホニウム、スルホニウムまたはアルカリ金属塩の存在下、反応させることによっても製造できる。そのような反応はスイス特許明細書第 862348 号に記載されている。

式 I の化合物を形成する反応は、非プロトン性の不活性有機溶媒中で有利に行われる。そのような溶媒は炭化水素、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレンまたはシクロヘキサン；塩素化炭化水素、例えば、フクロロメタン、トリクロロメタン、テトラクロロメタンまたはクロロベンゼン；エーテル類、例えば、ジエチルエーテル、エチレンジグリコールジメチルエーテル、ジエチレンジグリコールジメチルエーテル、テトラヒドロフランまたはジオキサン；ニトリル、例えば、アセトニトリルまたはプロピオニトリル；およびアミド、例えば、ジメチルホルムアミド、ジエチルホルムアミドまたは N -メチルピロリドンである。反応温度は好ましくは -20°C と $+120^\circ\text{C}$ の間である。

式 IV のフェニルスルホンアミドは、式 I の有効成分の製造のために特に開示されそして製造された新規の化合物である。従って、それらは本発明のための一部分である。式 I の化合物の場合に上述した、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 についてと同じ好ましい範囲が、式 IV の化合物に適用される。それらは式 IX:



(IX)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 は式 I 中と同じに定義される。) の該当するフェニルスルホンクロライドから、アンモニウムによる反応により得られる。そのような反応は当業者にとって周知である。

式 IX のフェニルスルホンクロライドは、式 I の有効成分の製造のために特に開示されそして製造された新規の化合物である。従って、それらは本発明のための一部分である。式 I の化合物の場合に上述した、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 についてと同じ好ましい範囲が、式 IX の中間体に適用される。式 IX のフェニルスルホンクロライドは、適当に置換されている 2-クロロスルホンベンゾイルクロライド (参照: 例 4)

D. Davis, Soc. 2042. 2044(1932)) を、式 XI:



(XI)

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 は式 I 中と同じに定義される。) の化合物と、塩基の存在下、反応させることにより製造される。そのような反応は当業者に周知である。

式 IX のフェニルスルホニルクロライドも、2-イソプロピルチオ安息香酸 (参照、例えば H. Gilman, F. J. Webb, Am. Soc. 71, 4082-4083) を塩化チオニルと反応させて該当するベンゾイルクロライドを得、次いでそれを、塩基の存在下、式 (XI) の化合物と共に該当する 2-イソプロピルチオ安息香酸オキセチン-3-オールに変換し、そこで塩素と反応させて最後に式 IX のスルホニルクロライドを得る。そのような反応は当業者に周知である。

式 XI の化合物とその製造法は既知である (参照、例えば J. Am. Chem. Soc. 112, 3535-3539(1990); Bull. Chem. Soc. Japan 62, 2032(1989); Acta Chem. Scand. 28, 701(1974); Tetrahedron Letters 30, 2505-2508(1989); J. Am. Chem. Soc. 77, 4430(1955)).

式 I の化合物は有用植物である作物、特に穀草類、棉花、大豆、脂肪種子-セイヨウアブラナ、トウモロコシおよびイネにおける使用に対し顯著に適当であることを示す成長抑制および除草特性によって特徴付けられ、ダイズ作物と穀草類においての使用が特に好ましい。ダイズ作物中の雑草が発芽後処理で好ましく抑制される。式 I の化合物はそれらの高い分解性により特徴付けられる。

驚くべきことに、式 I の化合物もして更には式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 および R_6 が同時に水素原子である別の式 I の化合物が、成る特定の害草殺滅剤に対して応答することが判明した。これらの害草殺滅剤または解毒剤は、除草剤により起こされる害草に対して作物植物を保護することができる (例えば、意図しない過剰害草の場合)。更には、これらの解毒剤は、雑作との関連で、除草剤抵抗性の雑草に就いてその除草剤に対して抵抗性がないまたは不十分な抵抗性だけしか持たない作物植物を育成する場合の作物植物を害草から保護することができる。従って、本発明は有用植物中の雑草 (圃田と広葉雑草) を抑制するための選択的除草剤組成物であって、式 I の除草剤または式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 および R_6 が同時に水素原子である式 I の除草剤、及びその除草剤の植物毒性に対して作物を保護するが、雑草を保護しない害草殺滅剤 (枯死剤、解毒剤) からなる除草剤組成物、並びに有用植物の作物中の除草のため

特表平7-504173 (9)

式 VI のスルホニルカーバメートは新規でありして本発明の部分である。式 I の化合物の場合に上述した、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 および R_7 について同じ好ましい範囲が、式 VI の中間体に適用される。それらは、例えば、式 IV のスルホニアミドをジフェニルカーバメートと塩基の存在下反応させることにより得られる。そのような反応は当業者には既知である。

式 VII のアミンは、欧州特許出願第 00076887 号、0030138 号、0073582 号および 0126711 号および米国特許第 4579584 号に記載されている。

N-ピリミジニルおよび N-トリアジニルカーバメートは、例えば欧州特許公開公報 (EP-A-) 第 0101670 号に記載されている。

一般に、式 I の有効成分は、0.001 ないし 2 kg / ha、特に 0.005 ないし 1 kg / ha の施用量で好結果に使用される。所望の作用のために必要とされる施用量は試験によって決定できる。それは作用の型、作物植物および雑草の発達段階、ならびにまた施用法 (播種、時期、方法) に依存し、これらのパラメータのため、それは広い範囲内で変化し得る。

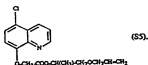
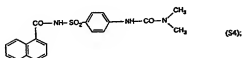
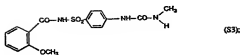
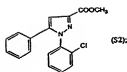
この組成物の使用、または除草剤と解毒剤の組み合わせ物に関する。

本発明の組成物中使用される害草殺滅剤は、例えば欧州特許公開公報 (EP-A-) 第 0492388 号および欧州特許公開公報 (EP-A-) 第 0094349 号に開示されているおりのキノリン-8-オキシ酢酸誘導体、例えば欧州特許公開公報 (EP-A-) 第 0268554 号に開示されているおりのジフェニルカルボン酸誘導体、および例えば欧州特許公開公報 (EP-A-) 第 0385484 号に開示されているおりのスルファモイルフェニル炭素誘導体に関する。

式 S1 ないし S5 の害草殺滅剤は本発明の組成物に使用するのに特に適している：



(S1)



式 S1、S2、S3、S4 および S5 の系害殺滅剤からなる特に好ましい組成物は、使用される式 1 の除草剤が式 2、0.11 の化合物であるそれである：

する系害殺滅剤の比率を要求する。これと対照的に種子被覆は耕作区域のヘクタール当りの除草剤の適用量に比例してかなりより少ない量の系害殺滅剤を要求する。

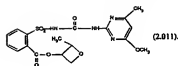
ほ場処理の場合は、概して、0.001 ないし 5.0 kg/ha の系害殺滅剤、好ましくは 0.005 ないし 0.5 kg/ha の系害殺滅剤が適用される。

除草剤の適用量は、概して 0.001 と 2 kg/ha の間、好ましくは 0.001 と 0.5 kg/ha の間である。

概して、系害殺滅剤 0.001 ないし 10 g/(種子 kg)、好ましくは系害殺滅剤 0.05 ないし 2 g/(種子 kg) が種子被覆の場合は、適用される。系害殺滅剤を、播種の短時間前の種子浸漬のための液剤の形で適用する場合は、有効成分を 1 ないし 10000 ppm、好ましくは 100 ないし 1000 ppm の濃度で含有する系害殺滅剤の溶液を使用するのが好都合である。

適用の目的のためには、系害殺滅剤、又は拮抗される除草剤と共に本発明に従って使用される系害殺滅剤の組み合わせを、製剤技術で常用されている補助剤と共に使用するのが好都合であり、それら補助剤は既に式 1 の化合物の適用に関連して上で記述している。

本発明は、式 1 の新規の有効成分からなる除草と植物成長調節のための製剤、植物成長抑制の方法に関する。植物成長調節剤は、農業経営的に所望する、植物中のまたは植物に与える生化学的または生理学的および/または形態学的変形の原因となる物質である。



意図する使用によって、系害殺滅剤または解毒剤は、作物植物の種子を前処理するために（種子被覆または収穫の処理）使用されまたは播種の前または後に土壌中に導入する。

別法としては、それは純粋な有効成分としてまたは種子の発芽の前または後に除草剤と共に適用できる。従って、植物または種子は、植物毒性化学品の適用時点とは実質的に独立して系害殺滅剤で処理できる。別法としては、植物は植物毒性化学品と系害殺滅剤の同時適用（タンク混合）により処理され得る。発芽前処理とは、播種前の耕作区域の処理および種子は播種されたが植物はまだ発芽していない耕作区域の処理を包含する。

適用される系害殺滅剤の除草剤に対する適用量は、適用方法に大きく依存する。一般には、系害殺滅剤と除草剤の組み合わせのタンク混合物を使用するか、または系害殺滅剤と除草剤の別々の適用によるいずれかによって実施されるほ場処理は、1:100 ないし 1:1、好ましくは 1:20 ないし 1:1、特に 1:1 の除草剤に対し

本発明の組成物中に含有される有効成分は、適用時期、適用量、適用形式と支配環境によるいろいろな方法で、植物成長に影響する。例えば、式 1 の植物成長調節剤は植物の徒長を抑制できる。この型の作用は、芝生に、庭園植物の栽培で、果樹園で、路傍に、運動場と工業区域に適用する場合に、そしてそれらだけでなく例えばタバコ栽培におけるような 2 次発芽の特定抑制でも、有用である。耕作農業では、強化による発芽の徒長抑制は例外的に減少し、同様の農業経営的成果は、脂肪種子セイウツアブラナ、ヒマワリ、トウモロコシおよび他の作物植物でも実現される。更に、徒長防止は単位面積当りの植物数を増加することを意味する。成長抑制剤を適用できる他の分野は、農業または牧場の広大な作物での地被植物の選択的抑制であり、被覆作物をそれらから結することなく強力に成長抑制することにより行い、そのため、主作物との競争はなくなるが、浸食防止、富栄養化および土壌流失のような農業経営的に役立つ効果が保持される。

植物成長を抑制する方法は、実効的の意味で、植物の遺伝学的な特性によって決定されるような植物のライフサイクルを変えることなく植物の自然の発達を管理する方法を意味するものと理解されるべきである。植物調節剤の方法は、個々の場合に決定される植物の発達時期の個々の時点で使用される。式 1 の有効成分は植物の発芽の前または後、例えば、既に種または苗木に、根、莖、葉、

茎、葉、花または他の植物部分に施用される。これは例えば、有効成分を、純粋な有効成分としてまたは組成物の形態として植物に施用することによって、および／または植物の栄養増進（土壌）を処理することにより行うことができる。

種々の方法および技術は、植物成長を調節するために式Ⅰの化合物または式Ⅰの化合物を含む組成物を使用するのに適する。例えば、以下の通りである：

ⅰ）種子被覆

a) 種子表面を均一に覆うまで、容器中で振り混ぜることにより、水和剤として調合された有効成分で種子を被覆する（乾式被覆）。種子 1 kg につき式Ⅰの有効成分を 4 g までをこの方法において使用する（50% 製剤の場合、水和剤 8.0 g まで）。

b) 式Ⅰの有効成分の乳剤原液で、または水和剤として調合される式Ⅰの有効成分の水性溶液で a) 法を使用して種子をドレッシングする（湿式被覆）。

c) 1000 ppm までの式Ⅰの有効成分を含む溶液中で 1 ないし 72 時間、種子を浸し、必要ならば、続いて種子を乾燥させることにより種子を被覆する（種子浸漬法）。

当然、有効成分での処理が目的の作物に完全に向けられるため、種子のドレッシングまたは発芽した苗木の処

理剤または調合物は、公知の方法により、例えば有効成分を溶解、固体担体および適当な場合には表面活性化合物（界面活性剤）のような増量剤と十分に混合および／または溶解することにより、製造される。

下記のものもは溶媒として適当である：芳香族炭化水素特に炭素原子数 6 ないし 12 の部分、例えばキシレン系化合物またはアルキル化ナフタレンのようなアルキルベンゼンの混合物；パラフィン、シクロヘキサンまたはテトラヒドロナフタレンのような脂肪族および脂環式炭化水素；エタノール、プロパノールまたはブタノールのようなアルコール；プロピレングリコールまたはジプロピレングリコールエーテルのようなグリコール並びにそれらのエーテルおよびエステル；シクロヘキサノン、イソヘキサノールまたはジオセトンアルコールのようなケトン；N-メチル-2-ピロリドン、ジメチルスルホキシドのような強極性溶媒または水；ナタネ油、ヒマシ油または大豆油のような植物油、並びにそれらのエステル；シリコン油も適当である。

例えば粉剤および分散性粉末に使用する固体担体は通常、方解石、タルク、カオリン、モンモリロナイトまたはアタルジャイトのような天然岩石粉末である。物性を改良するため、高分散性微または高分散性微粒子ポリマーを添加することもできる。適当な殺菌、粒状化吸着

剤は本質的に好ましい施用方法である。概して、有効成分の 0.001 g ないし 4.0 g は一般に 1 kg の種子につき使用されるが、選択された方法に依存して両方の濃度限界からはずれることも可能であり、その選択された方法は他の有効成分または微量元素の添加もまた可能にする（反復被覆）。

ⅱ）有効成分の放出例題

溶解した有効成分を、緩衝粒状固体または重合粒子（尿素／ホルムアルデヒド）に適用し、乾燥させる。必要ならば、有効成分を特定期間かけて放出できる被覆を適用できる（被覆殺菌）。

式Ⅰの化合物は合成によって得られるそのままの形態で、あるいは好ましくは製剤業界で慣用の補助剤と共に使用され、そのため公知の方法により、例えば、乳剤原液、直接噴霧可能な、又は希釈可能な溶液、希釈乳剤、水和剤、水溶液、粉剤、粒剤および例えば、ポリマー物質中のカプセル化剤に加工される。噴霧、蒸化、散粉、蒸展、散水又は注水のような適用方法ならびに組成物の型は、所期目的および使用環境に適合するように選ばれ

る。

製剤、即ち式Ⅰの有効成分および必要な場合には、1 種またはそれ以上の固体又は液体の補助剤を含む組成物、

性担体は多孔性のもので、例えば、粘土、凝縮レンガ、セピオライトまたはベントナイトであり、ならびに適当な非吸水性担体は例えば方解石または砂である。さらに広範囲の荷もって粒状化した無機質または有機質の物質、特にドロマイトまたは粉石化植物残骸が使用される。

製剤される式Ⅰで表わされる有効成分の性質により、適する界面活性化合物は、良好な乳化、分散および水溶性を有する非イオン性、陽イオン性および／又は陰イオン性界面活性剤である。界面活性剤の用語はまた界面活性剤の混合物も意味するものと理解すべきである。

いわゆる水溶性石ケンまたは水溶性合成界面活性剤は適当な陰イオン性界面活性剤である。

石ケンは高級脂肪族（C₁₂ - C₁₈）のアルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、または金属塩または置換のアンモニウム塩、例えばオレイン酸またはステアリン酸、あるいは例えばココナツ油または脂肪から得られる天然脂肪酸混合物のナトリウムまたはカリウム塩である。脂肪族メチルタウリン塩もさらに含まれる。

しかし、いわゆる合成界面活性剤は、特に脂肪アルコールスルホネート、脂肪アルコールスルフェート、スルホン化ベンズイミダゾール誘導体またはアルキルアリー

ルスルホネートが、さらに頻繁に使用される。

脂肪アルコールスルホネートまたは脂肪アルコールサルフェートは一般に、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、または未置換または置換のアモニウム塩の形態であり、アルキル基のアルキル部分をも含む炭素原子数8ないし22のアルキル基を含み、例えば、リグノスルホン酸、ドデシルサルフェートまたは天然脂肪酸から得られる脂肪アルコールサルフェートの混合物のナトリウムまたはカルシウム塩である。これらの化合物はまた、硫酸エステル、および脂肪酸アルコール/エチレンオキシド付加物のスルホン酸の塩も含まれる。スルホン化ベンズイミダゾール誘導体は、好ましくは二つのスルホン基と8ないし22の炭素原子を含む一つの脂肪酸基とを含む。アルキルアリールスルホネートの例は、ドデシルベンゼンスルホン酸、ジブチルナフタレンスルホン酸またはナフタレンスルホン酸/ホルムアルデヒド縮合物のナトリウム、カルシウムまたはトリエタノールアミン塩である。

対応するホスフェート、例えば、エチレンオキシド4ないし14モルを持つ β -ノニルフェノールの付加物のリン酸エステルの塩があげられ、またはリン酸質もまたさらに適用である。

ポリオキシエチレンソルビタントリオレートのようなポリオキシエチレンソルビタンの脂肪酸エステルもさらに適用である。

カチオン性界面活性剤は、特にN-置換基として少なくとも一つの炭素原子数8ないし22のアルキル基と、他の置換基として未置換または低級ハロゲン化アルキル基、ベンジル基または低級ヒドロキシアルキル基とを含む第四アモニウム塩である。

塩はハライド、メチルサルフェートまたはエチルスルフェート、例えば、ステアリルトリメチルアモニウムクロリドまたはベンジルジ(2-クロロエチル)エチルアモニウムブロマイドの形態が好ましい。

製剤業界で慣用的に使用されている界面活性剤は特に、以下の刊行物に記載されている。

「マクカッチャングス デタージェンツ アンド エマルジファイアーズ アニュアル (Mc Cutcheon's Detergents and Emulsifiers Annual)」、マク出版社、グレン ロック、ニュージャージー州、1985年；
「エム アンド ジェー、アッシュ、"エンサイクロペディア オブ サーファクタンツ (Encyclopedia of Surfactants) " 1-3巻、ケミカル出版社、ニューヨーク、1980-1981年；
ヘルムト スタッヒエ (Dr. Helmut Stache) 著、"テ

非イオン性界面活性剤は好ましくは主に、脂肪族または脂環式アルコール、または飽和または不飽和脂肪酸およびアルキルフェノールのポリグリコールエーテル誘導体であり、誘導体は3ないし30個のグリコールエーテル基、および(脂肪族)炭化水素基に8ないし20個の炭素原子、そしてアルキルフェノールのアルキル部分に8ないし18個の炭素原子を含む得る。

他の非イオン性界面活性剤はポリプロピレングリコール、エチレングリコール/ポリプロピレングリコールおよびアルキル炭中に1ないし10個の炭素原子を含むアルキルポリプロピレングリコールとのポリエチレンオキシド水溶性付加物であり、その付加物は20ないし250個のエチレングリコールエーテル基、および10ないし100個のプロピレングリコールエーテル基を含む。上記の化合物は通常、プロピレングリコール単位当たり1ないし5のエチレングリコール単位を含む。

非イオン性界面活性剤の代表例は、ノニルフェノール-ポリエトキシエタノール、ヒマシ油-ポリグリコールエーテル、ポリプロピレン/ポリエチレンオキシド-付加物、トリブチルフェノキシポリエトキシエタノール、ポリエチレングリコールおよびオクタフルフェノキシポリエトキシエタノールである。

シンドー・タッセンブーフ (Tensid-Taschenbuch)、カール・ハンザー出版社、ミュンヘン/ウィーン (Carl Hanser-Verlag, Munich/Vienna)、1981年。

通常、製剤は式Iの有効成分0、1ないし99%、特に0、1ないし95%、固体または液体補助剤1ないし99%、および界面活性剤0ないし25%、特に0、1ないし25%を含む。

使用者は一般に希釈した組成物を使用するが、市販の製品は原液として製剤化されるのが好ましい。

組成物は安定剤、例えば、エポキシ化されているか、またはエポキシ化されていない媒物油(エポキシ化コナツップ油、ナタネ油または大豆油)、消泡剤、例えば、シリコン油、防腐剤、粘度調節剤、結合物、粘着付着剤並びに特別の効果を出すための肥料のような他の補助剤、または他の有効物質を含むこともできる。

好ましい製剤は、特に下記の組成を持つ：
(%＝重量パーセント)。

有効成分：	
有効成分	1ないし20%、好ましくは5ないし10%
界面活性剤：	
界面活性剤	5ないし30%、好ましくは10ないし

液体塩体	20%
	5ないし94%、好ましくは70ないし85%

粉剤:

有効成分	0.1ないし10%、好ましくは0.1ないし1%
固体塩体	99.9ないし99%、好ましくは99.9ないし99%

懸濁液:

有効成分	5ないし75%、好ましくは10ないし50%
水	94ないし24%、好ましくは88ないし30%
表面活性剤	1ないし40%、好ましくは2ないし30%
水和剤:	
有効成分	0.5ないし90%、好ましくは1ないし80%
表面活性剤	0.5ないし20%、好ましくは1ないし15%
固体塩体	5ないし95%、好ましくは15ないし90%

粒剤:

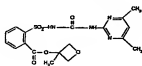
有効成分	0.5ないし30%、好ましくは3ないし15%
------	------------------------



アンモニア1.5gを実施例H1で得られた塩化メチレン溶液中へ0ないし5℃で1時間にわたり通過せしめる。混合物をろ過し、次いで水で処理し、そして有機相を分離し、水で洗浄し、Mg, SO₂上で乾燥する。減圧下乾燥した後、表記化合物の結晶2.1gを得る。m. p. 113-115℃。

実施例H3:

N-(2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)フェニルスルホンイル)-N'-(4,6-ジメチル-1,3-ピリミジン-2-イル)尿素



2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)フェニルスルホンアミド 1.36g、4,6-ジメチル-1,3-ピリミジン-2-イルフェニルカーバメート1.35

固体塩体材料 99.5ないし70%、好ましくは97ないし85%

製造実施例実施例H1:

2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)フェニルスルホンクロライド



3-メチル-3-ヒドロキシオキセタン6.25g、2-クロロスルホンルベンゾイルクロライド16.1gおよび無水塩化メチレン40mlの混合物を、0-5℃で、ピリジン5.6g(無水塩化メチレン10mlに溶解した)と共に処理する。次いで、反応混合物を20ないし25℃の温度で2時間にわたり攪拌し、次いで水100ml中へ投入する。有機相を分離し、そしてMg, SO₂上で乾燥し、表記化合物の塩化メチレン溶液を更に操作することなしに実施例H2で使用する。

実施例H2:

2-(3-メチルオキセタン-3-オキシカルボニル)フェニルスルホンアミド




gおよび無水ジメチルホルムアミド4mlを、20-25℃で滴下して、シアザピシクロ-[5,4,0]-7-ウンデセン6.78gとジメチルホルムアミド1mlの混合物と処理し、次いで20ないし25℃の温度で4時間にわたり攪拌する。混合物を水と10%塩酸に移しpH5にした後、m. p. 198-198℃(分解)の表記化合物が結晶析出する。

下記の表に示した式Iの化合物と、それらの中間体を同様にして製造する。

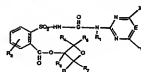
表 1 : 下式の中問体






化合物 No.	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇	M.p. [°C]
1.001	CH ₃	H	H	H	H	113-115
1.002	CH ₃	CH ₃	H	H	H	Oil
1.003	H	CH ₃	CH ₃	H	H	
1.004	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	
1.005	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	
1.006	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	

化合物 No.	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇	X	Y	E (Δp, °C)
2.023	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	OCCH ₃	CH
2.024	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCCH ₃	OCCH ₃	CH
2.025	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCCH ₃	OCCH ₃	CH
2.026	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	Cl	OCCH ₃	CH
2.027	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCCH ₃	CH ₃	N
2.028	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCCH ₃		N
2.029	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCCH ₃	OCCH ₃	N
2.030	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	HNCCH ₃	OCCH ₃	N
2.031	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	CH ₃	CH ₃	CH
2.032	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	OCCH ₃	CH
2.033	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	OCCH ₃	OCCH ₃	CH
2.034	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCCH ₃	OCCH ₃	CH
2.035	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	Cl	OCCH ₃	CH
2.036	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	OCCH ₃	CH ₃	N
2.037	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	OCCH ₃		N
2.038	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	OCCH ₃	OCCH ₃	N
2.039	H	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	HNCCH ₃	OCCH ₃	N
2.040	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH
2.041	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCCH ₃	CH
2.042	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCCH ₃	OCCH ₃	CH
2.043	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCCH ₃	OCCH ₃	CH
2.044	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	Cl	OCCH ₃	CH ₃	CH
2.045	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	N
2.046	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		N	N
2.047	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCCH ₃	OCCH ₃	N
2.048	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	HNCCH ₃	OCCH ₃	N
2.049	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH
2.050	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	N
2.051	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	N
2.052	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCCH ₃	OCCH ₃	N
2.053	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCCH ₃	OCCH ₃	CH

第2表: 式 I の化合物



化合物 No.	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇	X	Y	E [M _p °C]
2.001	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	196-198
2.002	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	183-185
2.003	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH	
2.004	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.005	H	H	CH ₃	H	H	H	Cl	OC ₂ H ₅	CH	
2.006	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	N	130-152
2.007	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅		N	
2.008	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N	
2.009	H	H	CH ₃	H	H	H	HNC ₂ H ₃	OC ₂ H ₅	N	
2.010	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	120
2.011	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	173-175
2.012	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH	
2.013	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	CH	
2.014	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH	
2.015	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	CH	
2.016	H	H	CH ₃	H	H	H	Cl	OC ₂ H ₅	CH	
2.017	H	H	CH ₃	H	H	H	CH ₃	OC ₂ H ₅	N	159-161
2.018	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅		N	
2.019	H	H	CH ₃	H	H	H	OC ₂ H ₅	OC ₂ H ₅	N	
2.020	H	H	CH ₃	H	H	H	HNC ₂ H ₃	OC ₂ H ₅	N	
2.021	H	H	CH ₃	H	H	H	N(CH ₃) ₂	OC ₂ H ₅	N	
2.022	H	H	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH	

化合物 No.	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	R ₆	R ₇	X	Y	E (M.p.°C)
2.054	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCH ₃	OCHF ₂	CH
2.055	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	Cl	OCH ₃	CH
2.056	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	HNCH ₃	OC ₂ H ₅	CH
2.057	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃	OCH ₃		CH

式 1 の有効成分の製剤例

(% = 重量%)

F 1. 水和剂

	a)	b)	c)
表 2 の有効成分	20%	50%	0.5%
リグノスルホン酸ナトリウム	5%	5%	5%
ラウリル硫酸ナトリウム	3%	—	—
ポリブチレンマレイン酸共重合体 酸ナトリウム	—	8%	6%
ポリブチレンマレイン酸共重合体 酸ナトリウム	—	2%	2%
(エチルブチレート 7-80%)			
高分散ケイ酸	5%	27%	27%
カオリン	97%	—	—
炭素	—	—	59.5%

有効成分は添加剤と十分に混合し、混合物を適当なミル
中で充分に粉砕する。所望の濃度の懸濁液を得るために

水で希釈できる水和剤を得る。

F 2. 水分散性粒剤

	a)	b)
表 2 の有効成分	75%	5%
ジフェニルジメチルジメチルジメチル	2%	0.5%
アラビヤゴム	1%	1%
硫酸ナトリウム	5%	3%
ジメチルジメチルジメチル	17%	15%
カオリン	-	75.5%

水との希釈により上記のような農薬物から、所望の濃度の乳剤が得られる。

F 3. 粉剤

	a)	b)
表 2 の有効成分	0.1%	1%
タルク	99.9%	-
カオリン	-	99%

組体と有効成分を均質に混合することにより、すぐ可以使用できる粉剤が得られる。

F 4. 押し出し粒剤

	a)	b)
表 2 の有効成分	10%	1%
リグノスルホン酸ナトリウム	2%	2%

製することによってあらゆる所望の濃度の懸濁液が作れる懸濁原液が得られる。

F 7. 塩酸液

表 2 の有効成分	5%
インプロピルアミン	1%
ジメチルジメチルジメチル	3%
(ジメチルジメチルジメチル)	
水	91%

生物学的実施例

実施例 B 1: 植物の萌芽期の除草作用

ブラスタックスの株を、膨張させたパーミキュライト (密度: 0.135 g/cm^3 、水吸着容量: 0.585 g/g) で満たす。非吸着性パーミキュライトを 70 ppm の濃度で有効成分を含む、脱イオン水中の水性有効成分エマルジョンで飽和した後、以下の植物の種をその表面に播く: おらんだがらし (*Nasturtium officinalis*)、メカボまたはコメカボサの一種 (*Agrostis tenuis*)、ハコベ (*Stellaria media*) およびシバの一種 (*Digitaria sanguinalis*)。

試験容器を連結し、 20°C 、約 20 klux の照度および 70% の相対大気湿度で制御された気象調節室に保持する。4 ないし 5 日の萌芽期に、株は局所的な大気湿度を増すため、透明な材料で覆われ、そして脱イオン水

カルボキシメチルセルロース 1% 1%

カオリン 87% 98%

有効成分を添加剤と混合し、そして混合物を粉砕し次いで水で湿らせる。混合物を押し出し次いで押出物を空気流で乾燥する。

F 5. 粒剤

表 2 の有効成分	3%
ポリエチレングリコール (分子量 200)	3%
カオリン	94%

ミキサー中で、ポリエチレングリコールで湿らせたカオリンを、細粉された有効成分で均一に被覆する。この方法で、非粉塵性の被覆粒剤が得られる。

F 6. 懸濁原液

	a)	b)
表 2 の有効成分	5%	40%
エチレングリコール	10%	10%
ジメチルジメチルジメチル	1%	6%
(ジメチルジメチルジメチル)		
リグノスルホン酸ナトリウム	5%	10%
カルボキシメチルセルロース	1%	1%
3% 水性ホルムアルデヒド溶液	0.2%	0.2%
75% 水性乳剤形態のシリコン油	0.8%	0.8%
水	77%	32%

細粉された有効成分を添加剤と均一に混合する。水と希

で濯水する。5 日後、0.5% の市販の液体肥料を濯水水に加える。播種 12 日後、試験は評価され、試験植物上の作用を以下の尺度を使って評価する。

1: 植物が発芽しないか、または完全に枯れる

2-3: 著しい被害作用

4-8: 中位の作用

7-8: 弱い作用

9: 作用なし (未処理の対照用と同様)

この試験で、式 1 の化合物は強力な除草作用を示す。

表 B 1: 萌芽期の作用

有効成分の濃度: 70 ppm

有効成分 No.	試験植物			
	おらんだがらし	メカボ	ハコベ	シバ
2.001	1	2	1	2
2.002	3	3	1	2
2.006	1	2	2	1
2.010	2	2	2	2
2.011	2	2	1	2
2.017	2	2	2	2

実施例 B 2: 萌芽後の除草作用 (接触除草剤)

萌芽後 (4 ないし 6 葉期以降)、多数の雑草について、単子葉および双子葉の両方にヘクタールあたり試験化合物

物 8-500 g の段と温度で有効成分の実施例 6 に従った水性分散液を噴霧し、植物を 24-28℃ および相対大気湿度 45-60% で保つ。試験を処理後 15 日間 にわたって評価する。

3 週間後、除草作用を 9 段階階級 (1=完全に枯らす、9=作用無し) を使用して、未処理の対照群と比較して評価する。6 ないし 9 の指数 (特に 7 ないし 8) は良好な耐性 (特に作物植物の場合) を示す。

この試験で、式 I の化合物は強力な除草作用を示す。同様な結果は、式 I の化合物を P1 ないし P5 および P7 に従って薬剤した場合にも得られる。

実施例 B3: 除草中の除草剤 No. 2, 011 のおおよそ式 S1 と S2 の悪害殺滅剤との除草剤の混合物の発芽後の植物悪害の影響

コムギを、プラスチック製鉢中、温室の条件下で 3 週間まで生育する。この段階で、式 I の除草剤を純粋な有効成分として並びに悪害殺滅剤との除草剤の混合物として、試験植物に適用する。適用は水 500 l / ha (ヘクタール) を使用して試験物質の水性けん濁液の形で実施する。除草剤の施用量は 30 / 15 / 8 g / ha であり、悪害殺滅剤の施用量は 60 g / ha である。適用後 28 日、試験をパーセンテージ係数を使用して評価する。100% は試験植物が枯死したことを意味し、0% は植物悪害の無かったことを意味する。結果は、使用さ

れた悪害殺滅剤が、コムギにおける除草剤による悪害を顕著に減らす能力のあることを示している。悪害殺滅剤の優れた防除作用の例を表 B3 に示す。

表 B3:

除草剤 化合物 No.	悪害殺滅剤 No.	除草剤の施用量 (g/ha)			
		30	15	8	
2,011	-	80	70	60	
2,011	S1 60	60	20	15	
2,011	S2 60	60	25	10	

実施例 B4: トウモロコシ中の除草剤 No. 2, 011 のおおよそ式 S3 の悪害殺滅剤との除草剤の混合物の発芽後の植物悪害の影響

トウモロコシを、プラスチック製鉢中、温室の条件下で 2.5 週間まで生育する。この段階で、式 I の除草剤を純粋な有効成分として並びに悪害殺滅剤との除草剤の混合物として、試験植物に適用する。適用は水 500 l / ha (ヘクタール) を使用して試験物質の水性けん濁液の形で実施する。除草剤の施用量は 30 / 15 / 8 g / ha であり、悪害殺滅剤の施用量は 60 g / ha である。

適用後 12 日、試験をパーセンテージ係数を使用して評価する。100% は試験植物が枯死したことを意味し、0% は植物悪害の無かったことを意味する。結果は、使用された悪害殺滅剤が、トウモロコシにおける除草剤による悪害を顕著に減らす能力のあることを示している。

悪害殺滅剤の優れた防除作用の例を表 B4 に示す。

表 B4:

除草剤 化合物 No.	悪害殺滅剤 No.	除草剤の施用量 (g/ha)			
		30	15	8	
2,011	-	90	80	75	
2,011	S3 60	65	50	30	

実施例 B5: トウモロコシ栽培で種子被覆のために、式 S4 の悪害殺滅剤との除草剤 No. 2, 011 の混合物の使用

トウモロコシ種子を 1 g / (種子 1 kg) の重量と同等の量で式 S4 の悪害殺滅剤で被覆する。次いで、トウモロコシを、プラスチック製鉢中、温室の条件下で 2.5 週間まで生育する。未処理のトウモロコシを同じ期まで処理したトウモロコシと平行して生育する。この段階で、式 I の除草剤を処理したそして未処理の試験植物に適用する。適用を、除草剤の水性けん濁液の形で水 500 l / ha で実施する。除草剤の施用量は 30 または 15 g / ha でありそして式 S4 の種子被覆悪害殺滅剤の施用量は 1 g / (種子 1 kg) である。適用 14 日後に、試験をパーセンテージ係数を使用して評価する。100% は試験植物が枯死したことを意味し、0% は植物悪害の無かったことを意味する。結果は、種子被覆剤として使用された悪害殺滅剤が、除草剤の発芽後処理による悪害を顕著に減らすことを示している。同様な結果は、除草剤

が効芽前に適用された場合にも得られる。悪害殺滅剤の優れた防除作用の例を表 B5 に示す。

表 B5:

除草剤 化合物 No.	悪害殺滅剤 No.	除草剤の施用量 (g/ha)			
		30	15	8	
2,011	-	90	80	75	
2,011	S4 60	20	10	05	

